

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平11-293058

(43) 公開日 平成11年(1999)10月26日

(51) Int.Cl.⁸

識別記号

F I

C 0 8 L 23/10

C 0 8 L 23/10

C 0 8 F 4/64

C 0 8 F 4/64

C 0 8 L 23/00

C 0 8 L 23/00

審査請求 未請求 請求項の数20 O L (全 22 頁)

(21) 出願番号

特願平10-104682

(22) 出願日

平成10年(1998)4月15日

(71) 出願人 000002093

住友化学工業株式会社

大阪府大阪市中央区北浜4丁目5番33号

(72) 発明者 常法寺 博文

千葉県市原市姉崎海岸5の1 住友化学工業株式会社内

(72) 発明者 穂積 英威

千葉県市原市姉崎海岸5の1 住友化学工業株式会社内

(72) 発明者 西山 忠明

千葉県市原市姉崎海岸5の1 住友化学工業株式会社内

(74) 代理人 弁理士 久保山 隆 (外1名)

(54) 【発明の名称】 熱可塑性樹脂組成物

(57) 【要約】

【課題】 ポリプロピレン系樹脂を含有し、成形外観及び常温や低温での耐衝撃性に優れ、高剛性を有し、かつスチレンのような芳香族ビニル化合物を含まない完全オレフィン成分のみからなる熱可塑性樹脂組成物を提供する。

【解決手段】 下記の(イ) 30~92重量%、(ロ) 3~50重量%及び(ハ) 5~50重量%を含有する熱可塑性樹脂組成物。

(イ) : ポリプロピレン系樹脂

(ロ) : エチレン、プロピレン及び炭素数4~20の α -オレフィンからなる群から選ばれた二種以上のオレフィンであって、該選ばれたオレフィンの炭素数の合計が6以上である二種以上のオレフィンを共重合して得られるオレフィン系共重合体

(ハ) : 無機充填材

【特許請求の範囲】

【請求項1】 下記の(イ) 30～92重量%、(ロ) 3～50重量%及び(ハ) 5～50重量%を含有する熱可塑性樹脂組成物。

(イ) : ポリプロピレン系樹脂

(ロ) : エチレン、プロピレン及び炭素数4～20の α -オレフィンからなる群から選ばれた二種以上のオレフィンであって、該選ばれたオレフィンの炭素数の合計が6以上である二種以上のオレフィンを共重合して得られるオレフィン系共重合体

(ハ) : 無機充填材

【請求項2】 (ロ) が、エチレン、プロピレン及び炭素数4～20の α -オレフィンからなる群から選ばれた二種以上のオレフィンであって、該選ばれたオレフィンの炭素数の合計が6以上である二種以上のオレフィン及び環状オレフィンを共重合して得られるオレフィン系共重合体である請求項1記載の熱可塑性樹脂組成物。

【請求項3】 環状オレフィンが環状モノオレフィンである請求項2記載の熱可塑性樹脂組成物。

【請求項4】 環状オレフィンが環状ポリエンである請求項2記載の熱可塑性樹脂組成物。

【請求項5】 (ロ) のオレフィンとしてプロピレンを含む請求項1記載の熱可塑性樹脂組成物。

【請求項6】 (ロ) のオレフィンとしてエチレン及びプロピレンを含む請求項1記載の熱可塑性樹脂組成物。

【請求項7】 (ロ) のオレフィンとしてのエチレンの含有量が90モル%以下である請求項1記載の熱可塑性樹脂組成物。

【請求項8】 (ロ) が下記式(1)の関係を充足する請求項1記載の熱可塑性樹脂組成物。

$$0.10 \leq [y / (x + y)] \leq 0.90$$

(xは(ロ)中のエチレンの含有量(モル%)を表し、yは(ロ)中の炭素数4～20の α -オレフィンの含有量(モル%)を表す。)

【請求項9】 (ロ) の温度135℃におけるテトラリン溶媒による極限粘度 $[\eta]$ が0.3～1.0である請求項1記載の熱可塑性樹脂組成物。

【請求項10】 (ロ) のゲル・パーミエーション・クロマトグラフィー(GPC)で測定される分子量分布(M_w/M_n)が3以下である請求項1記載の熱可塑性樹脂組成物。

【請求項11】 (ロ) について示差走査熱量計(DSC)で測定した場合に、結晶の融解に基づく1J/g以上のピーク及び結晶化に基づく1J/g以上のピークのいずれをも有しない請求項1記載の熱可塑性樹脂組成物。

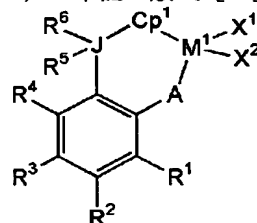
【請求項12】 (ロ) が、シクロペンタジエニル骨格を少なくとも1個有する周期表第4A族～第6A族の遷移金属錯体の存在下、エチレン、プロピレン及び炭素数4～20の α -オレフィンからなる群から選ばれた二種

以上のオレフィンであって、該選ばれたオレフィンの炭素数の合計が6以上である二種以上のオレフィンを共重合して得られるオレフィン系共重合体である請求項1記載の熱可塑性樹脂組成物。

【請求項13】 (ロ) が、シクロペンタジエニル骨格を少なくとも1個有する周期表第4A族～第6A族の非立体特異性構造である遷移金属錯体の存在下、エチレン、プロピレン及び炭素数4～20の α -オレフィンからなる群から選ばれた二種以上のオレフィンであって、該選ばれたオレフィンの炭素数の合計が6以上である二種以上のオレフィンを共重合して得られるオレフィン系共重合体である請求項1記載の熱可塑性樹脂組成物。

【請求項14】 (ロ) が、下記(A)と、下記(B)及び/又は下記(C)とを用いてなるオレフィン重合用触媒の存在下、エチレン、プロピレン及び炭素数4～20の α -オレフィンからなる群から選ばれた二種以上のオレフィンであって、該選ばれたオレフィンの炭素数の合計が6以上である二種以上のオレフィンを共重合して得られるオレフィン系共重合体である請求項1記載の熱可塑性樹脂組成物。

(A) : 下記一般式[I]で表される遷移金属錯体



[I]

(式中、 M^1 は元素の周期律表の第4族の遷移金属原子を示し、Aは元素の周期律表の第16族の原子を示し、Jは元素の周期律表の第14族の原子を示す。 Cp^1 はシクロペンタジエン形アニオン骨格を有する基を示す。 X^1 、 X^2 、 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 R^5 及び R^6 はそれぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、アルキル基、アラルキル基、アリール基、置換シリル基、アルコキシ基、アラルキルオキシ基、アリールオキシ基又は2置換アミノ基を示す。 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 R^5 及び R^6 は任意に結合して環を形成してもよい。)

(B) : 下記(B1)～(B3)から選ばれる1種以上のアルミニウム化合物

(B1) 一般式 $E^1 \cdot AlZ_3$ で示される有機アルミニウム化合物

(B2) 一般式 $\{-Al(E^2)-O-\}$ で示される構造を有する環状のアルミノキサン

(B3) 一般式 $E^3 \{-Al(E^3)-O-\}$ 、 AlE^3_3 で示される構造を有する線状のアルミノキサン

(但し、 E^1 、 E^2 及び E^3 は、それぞれ炭化水素基であり、全ての E^1 、全ての E^2 及び全ての E^3 は同じであっても異なってもよい。Zは水素原子又はハロゲン原子を表し、全てのZは同じであっても異なってもよい。)

い。aは $0 < a \leq 3$ を満足する数を、bは2以上の整数を、cは1以上の整数を表す。)

(C) : 下記(C1)～(C3)のいずれかのホウ素化合物

(C1) 一般式 $BQ^1Q^2Q^3$ で表されるホウ素化合物、

(C2) 一般式 $G^-(BQ^1Q^2Q^3Q^4)^-$ で表されるホウ素化合物、

(C3) 一般式 $(L-H)^-(BQ^1Q^2Q^3Q^4)^-$ で表されるホウ素化合物

(但し、Bは3価の原子価状態のホウ素原子であり、 $Q^1 \sim Q^4$ はハロゲン原子、炭化水素基、ハロゲン化炭化水素基、置換シリル基、アルコキシ基又は2置換アミノ基であり、それらは同じであっても異なってもよい。G⁻は無機又は有機のカチオンであり、Lは中性ルイス塩基であり、 $(L-H)^-$ はブレンステッド酸である。)

【請求項15】 一般式 [I] におけるAが、酸素原子である請求項14記載の熱可塑性樹脂組成物。

【請求項16】 一般式 [I] におけるR¹が、アルキル基、アラルキル基、アリール基又は置換シリル基である請求項14記載の熱可塑性樹脂組成物。

【請求項17】 一般式 [I] におけるX¹及びX²が、それぞれ独立にハロゲン原子、アルキル基、アラルキル基、アルコキシ基、アリールオキシ基又は2置換アミノ基である請求項14記載の熱可塑性樹脂組成物。

【請求項18】 化合物(B)が、トリエチルアルミニウム、トリイソブチルアルミニウム又はメチルアルミノキサンである請求項14記載の熱可塑性樹脂組成物。

【請求項19】 化合物(C)が、ジメチルアニリニウムテトラキス(ペンタフルオロフェニル)ボレート又はトリフェニルメチルテトラキス(ペンタフルオロフェニル)ボレートである請求項14記載の熱可塑性樹脂組成物。

【請求項20】 (ハ) 無機充填材が、タルク、炭酸カルシウム及びガラス繊維からなる群から選ばれ得る少なくとも一種である請求項1記載の熱可塑性樹脂組成物。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、熱可塑性樹脂組成物に関するものである。更に詳しくは、本発明は、ポリプロピレン系樹脂を含有し、成形外観及び常温や低温での耐衝撃性に優れ、高剛性を有し、かつスチレンのような芳香族ビニル化合物を含まない完全オレフィン成分のみからなる熱可塑性樹脂組成物に関するものである。

【0002】

【従来の技術】 ポリプロピレンは、汎用熱可塑性樹脂の中でも物性のバランスに優れ、各種分野に使用されているが、硬質塩化ビニル樹脂、ポリスチレン樹脂、ABS樹脂等の汎用樹脂と比較すると、剛性が低い欠点があ

る。最近、高剛性タイプのポリプロピレンが開発されているものの、耐衝撃性に劣る欠点がある。また、ポリプロピレンにガラス繊維等充填材と既存のエラストマーを併用し高剛性かつ高耐衝撃性の材料が開発されているが、成形外観が劣り、使用するに耐えない。

【0003】 一方、ポリプロピレン系樹脂に、共役ジエンスチレン共重合体の水添物をブレンドすることにより成形外観及び耐衝撃性に優れ、かつ高剛性を有する熱可塑性樹脂組成物を提供する方法が特開平7-238192号公報に開示されている。しかしながら、上述の共役ジエンスチレン共重合体の水添物は、その構造中にスチレンを含有するために耐侯性、中でも紫外線安定性が必ずしも十分ではないことから、その改良が期待されている。更に近年の高分子系材料のリサイクルへの要求の高まり、並びに環境問題を配慮した材料開発の観点等からは、望ましくはスチレンのような芳香族ビニル化合物を含まない完全オレフィン成分のみからなる材料のデザインが期待されている。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】 かかる状況の下、本発明が解決しようとする課題は、ポリプロピレン系樹脂を含有し、成形外観及び常温や低温での耐衝撃性に優れ、高剛性を有し、かつスチレンのような芳香族ビニル化合物を含まない完全オレフィン成分のみからなる熱可塑性樹脂組成物を提供する点に提供する点に存するものである。

【0005】

【課題を解決するための手段】 すなわち、本発明は、下記(イ)30～92重量%、(ロ)3～50重量%及び(ハ)5～50重量%を含有する熱可塑性樹脂組成物に係るものである。

(イ) : ポリプロピレン系樹脂

(ロ) : エチレン、プロピレン及び炭素数4～20の α -オレフィンからなる群から選ばれた二種以上のオレフィンであって、該選ばれたオレフィンの炭素数の合計が6以上である二種以上のオレフィンを共重合して得られるオレフィン系共重合体

(ハ) : 無機充填材

【0006】

【発明の実施の形態】 本発明の成分(イ)は、ポリプロピレン系樹脂である。

【0007】 本発明のポリプロピレン系樹脂は、アイソタクチックのポリプロピレンもしくはシンジオタクチックのポリプロピレンで、ホモタイプやコモノマーを含むランダムタイプ、もしくは、多段重合によるブロックタイプ等が挙げられる。該ポリプロピレン系樹脂は、気相重合法、バルク重合法、溶媒重合法及び任意にそれらを組み合わせて多段重合を採用することができる、また、かかる重合体の数平均分子量についても特に制限はないが、好ましくは10,000～1,000,000に調

整される。

【0008】なお、(イ)としては、該当する市販品を用いることもできる。また2種類以上の該当品を併用してもよい。

【0009】本発明の成分(ロ)は、エチレン、プロピレン及び炭素数4～20の α -オレフィンからなる群から選ばれた二種以上のオレフィンであって、該選ばれたオレフィンの炭素数の合計が6以上である二種以上のオレフィンを共重合して得られるオレフィン系共重合体である。

【0010】選ばれたオレフィンの炭素数の合計は6以上であることが必要である。炭素数の合計が6未満となるようなオレフィンの組み合わせを選択した場合、得られる熱可塑性樹脂組成物を用いて成形した成形品の耐衝撃性に劣る。なお2種類以上の(ロ)成分を併用してもよい。

【0011】炭素数4～20の α -オレフィンとしては、直鎖状及び分岐状の α -オレフィンが含まれ、具体的には、直鎖状の α -オレフィンとしては、1-ブテン、1-ペンテン、1-ヘキセン、1-ヘプテン、1-オクテン、1-ノネン、1-デセン、1-ウンデセン、1-ドデセン、1-トリデセン、1-テトラデセン、1-ペンタデセン、1-ヘキサデセン、1-ヘプタデセン、1-オクタデセン、1-ナノデセン、1-エイコセン等が例示され、分岐状の α -オレフィンとしては、3-メチル-1-ブテン、3-メチル-1-ペンテン、4-メチル-1-ペンテン、2-エチル-1-ヘキセン、2, 2, 4-トリメチル-1-ペンテン等が例示される。

【0012】選ばれた二種以上のオレフィンの組み合わせの具体例としては、エチレン/1-ブテン、エチレン/1-ヘキセン、エチレン/1-オクテン、エチレン/1-デセン、エチレン/1-オクタデセン、エチレン/4-メチル-1-ペンテン、プロピレン/1-ブテン、プロピレン/1-ヘキセン、プロピレン/1-オクテン、プロピレン/1-デセン、プロピレン/1-オクタデセン、プロピレン/4-メチル-1-ペンテン、1-ブテン/1-ヘキセン、1-ブテン/1-オクテン、1-ブテン/1-デセン、1-ブテン/1-オクタデセン、1-ブテン/4-メチル-1-ペンテン、1-ヘキセン/1-オクテン、1-ヘキセン/1-デセン、1-ヘキセン/1-オクタデセン、1-ヘキセン/4-メチル-1-ペンテン、1-オクテン/1-デセン、1-オクテン/1-オクタデセン、1-オクテン/4-メチル-1-ペンテン、1-デセン/1-オクタデセン、1-デセン/4-メチル-1-ペンテン、1-オクタデセン/4-メチル-1-ペンテン、エチレン/プロピレン/1-ブテン、エチレン/プロピレン/1-ヘキセン、エチレン/プロピレン/1-オクテン、エチレン/プロピレン/1-デセン、エチレン/プロピレン/1-オクタデセン、エチレン/プロピレン/4-メチル-1-ペン

テン、エチレン/1-ブテン/1-ヘキセン、エチレン/1-ブテン/1-オクテン、エチレン/1-ブテン/1-デセン、エチレン/1-ブテン/1-オクタデセン、エチレン/1-ブテン/4-メチル-1-ペンテン、エチレン/1-ヘキセン/1-オクテン、エチレン/1-ヘキセン/1-デセン、エチレン/1-ヘキセン/1-オクタデセン、エチレン/1-ヘキセン/4-メチル-1-ペンテン、エチレン/1-オクテン/1-デセン、エチレン/1-オクテン/1-オクタデセン、エチレン/1-オクテン/4-メチル-1-ペンテン、エチレン/1-デセン/1-オクタデセン、エチレン/1-デセン/4-メチル-1-ペンテン、エチレン/1-オクタデセン/4-メチル-1-ペンテン、プロピレン/1-ブテン/1-ヘキセン、プロピレン/1-ブテン/1-オクテン、プロピレン/1-ブテン/1-デセン、プロピレン/1-ブテン/1-オクタデセン、プロピレン/1-ブテン/4-メチル-1-ペンテン、プロピレン/1-ヘキセン/1-オクテン、プロピレン/1-ヘキセン/1-デセン、プロピレン/1-ヘキセン/1-オクタデセン、プロピレン/1-ヘキセン/4-メチル-1-ペンテン、プロピレン/1-オクテン/1-デセン、プロピレン/1-オクテン/1-オクタデセン、プロピレン/1-オクテン/4-メチル-1-ペンテン、プロピレン/1-デセン/1-オクタデセン、プロピレン/1-デセン/4-メチル-1-ペンテン、プロピレン/1-オクタデセン/4-メチル-1-ペンテン、1-ブテン/1-ヘキセン/1-オクテン、1-ブテン/1-ヘキセン/1-デセン、1-ブテン/1-ヘキセン/1-オクタデセン、1-ブテン/1-ヘキセン/4-メチル-1-ペンテン、1-ブテン/1-オクテン/1-オクタデセン、1-ブテン/1-オクテン/4-メチル-1-ペンテン、1-ブテン/1-デセン/1-オクタデセン、1-ブテン/1-デセン/4-メチル-1-ペンテン、1-ブテン/1-オクタデセン/4-メチル-1-ペンテン、エチレン/プロピレン/1-ブテン/1-ヘキセン、エチレン/プロピレン/1-ブテン/1-オクテン、エチレン/プロピレン/1-ブテン/1-デセン、エチレン/プロピレン/1-ブテン/1-オクタデセン、エチレン/プロピレン/1-ブテン/4-メチル-1-ペンテン、エチレン/1-ブテン/1-ヘキセン/1-オクテン、エチレン/1-ブテン/1-ヘキセン/1-デセン、エチレン/1-ブテン/1-ヘキセン/1-オクタデセン、エチレン/1-ブテン/1-ヘキセン/4-メチル-1-ペンテン、エチレン/プロピレン/1-ヘキセン/1-オクテン、エチレン/プロピレン/1-ヘキセン/1-デセン、エチレン/プロピレン/1-ヘキセン/1-オクタデセン、エチレン/プロピレン/1-ヘキセン/4-メチル-1-ペンテン等があげられる。

10

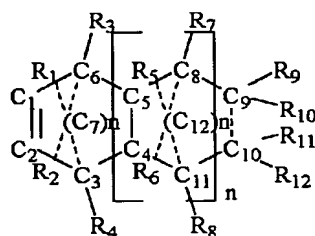
20

30

40

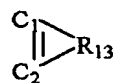
50

【0013】(ロ)は、エチレン、プロピレン及び炭素数4～20の α -オレフィンからなる群から選ばれた二種以上のオレフィンであって、該選ばれたオレフィンの炭素数の合計が6以上である二種以上のオレフィン及び環状オレフィンを共重合して得られるオレフィン系共重合体であることが好ましい。ここで、上記、「二種以上のオレフィン」と「環状オレフィン」は、相互に異なる概念である。

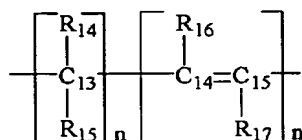


*

[II]



[III]



[IV]

【0016】(式中nは0以上の整数を表す。C₁～C₁₅は炭素原子であり、C₁～C₂は重合性二重結合を形成している。R₁～R₁₇は水素原子、ハロゲン原子、水酸基、アミノ基及び炭素原子数1～20の有機基からなる群から選ばれる置換基を表す。一般式[II]はC₃とC₆、C₈とC₁₁がそれぞれ(C₇)_n、(C₁₂)_nを介して結合することもできる。R₉、R₁₀とR₁₁、R₁₂は構造式[IV]を介して環を形成してもよい。一般式[III]はR₁₃として構造式[IV]を選択し、環状構造を形成することができる。)

【0017】ここに置換基の一員である炭素原子数1～20の有機基の具体例としては、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、ヘキシル基、オクチル基、ドデシル基等のアルキル基；フェニル基、トリル基、ナフチル基等のアリール基；ベンジル基、フェネチル基等のアラールキル基；メチリデン基、エチリデン基等のアルキリデン基；ビニル基、アリル基等のアルケニル基；メトキシ基、エトキシ基等のアルコキシ基；フェノキシ基等のアリーロキシ基；アセチル基等のアシル基；メトキシカルボニル基、エトキシカルボニル基等のアルコキシカルボニル基；アセチルオキシ基等のアシルオキシ基；トリメチルシリル基等の(置換)シリル基；並びに上記アルキル基、アリール基、及びアラールキル基の水素原子の一部がハロゲン原子、水酸基、アミノ基、アシル基、カルボキシ基、アルコキシ基、アルコキシカルボニル基、アシルオキシ基、(置換)シリル基、アルキルアミノ基あるいはシアノ基で置換された基をあげることができる。

【0018】一般式[II]で示される環状オレフィン化合物の具体例としては、ノルボルネン、5-メチルノルボル

*【0014】好ましい環状オレフィンとして、環状モノオレフィン及び環状ポリエンをあげることができる。

【0015】環状オレフィンは、4個以上の炭素原子が1つ以上の環を形成し、少なくとも分子中に炭素-炭素二重結合を1つ以上含む各種の置換基を有してもよい環状化合物である。かかる環状オレフィンの具体的構造としては、たとえば下記一般式[II]又は[III]で示す化合物を例示することができる。

30

40

50

ルネン、5-エチルノルボルネン、5-プロピルノルボルネン、5, 6-ジメチルノルボルネン、1-メチルノルボルネン、7-メチルノルボルネン、5, 5, 6-トリメチルノルボルネン、5-フェニルノルボルネン、5-ベンジルノルボルネン、5-エチリデンノルボルネン、5-ビニルノルボルネン、1, 4, 5, 8-ジメタノー-1, 2, 3, 4, 4a, 5, 8, 8a-オクタヒドロナフタレン、2-メチルー-1, 4, 5, 8-ジメタノー-1, 2, 3, 4, 4a, 5, 8, 8a-オクタヒドロナフタレン、2-エチルー-1, 4, 5, 8-ジメタノー-1, 2, 3, 4, 4a, 5, 8, 8a-オクタヒドロナフタレン、2, 3-ジメチルー-1, 4, 5, 8-ジメタノー-1, 2, 3, 4, 4a, 5, 8, 8a-オクタヒドロナフタレン、2-ヘキシルー-1, 4, 5, 8-ジメタノー-1, 2, 3, 4, 4a, 5, 8, 8a-オクタヒドロナフタレン、2-エチリデンー-1, 4, 5, 8-ジメタノー-1, 2, 3, 4, 4a, 5, 8, 8a-オクタヒドロナフタレン、2-フルオロー-1, 4, 5, 8-ジメタノー-1, 2, 3, 4, 4a, 5, 8, 8a-オクタヒドロナフタレン、1, 5-ジメチルー-1, 4, 5, 8-ジメタノー-1, 2, 3, 4, 4a, 5, 8, 8a-オクタヒドロナフタレン、2-シクロヘキシルー-1, 4, 5, 8-ジメタノー-1, 2, 3, 4, 4a, 5, 8, 8a-オクタヒドロナフタレン、2, 3-ジクロロー-1, 4, 5, 8-ジメタノー-1, 2, 3, 4, 4a, 5, 8, 8a-オクタヒドロナフタレン、2-イソブチルー-1, 4, 5, 8-ジメタノー-1, 2, 3, 4, 4a, 5, 8, 8a-オクタヒドロナフタレン、1, 2-ジヒドロジシクロペンタジエン、5-クロロノルボルネン、5, 5-ジクロロノルボルネン、5-フルオロノルボル

ネン、5, 5, 6-トリフルオロ-6-トリフルオロメチルノルボルネン、5-クロロメチルノルボルネン、5-メトキシノルボルネン、5, 6-ジカルボキシルノルボルネンアンハイドレート、5-ジメチルアミノノルボルネン、5-シアノノルボルネン等を例示することができる。

【0019】一般式[III]で示される環状オレフィン化合物としては、シクロペンテン、3-メチルシクロペンテン、4-メチルシクロペンテン、3, 4-ジメチルシクロペンテン、3, 5-ジメチルシクロペンテン、3-クロロシクロペンテン、シクロヘキセン、3-メチルシクロヘキセン、4-メチルシクロヘキセン、3, 4-ジメチルシクロヘキセン、3-クロロシクロヘキセン、シクロヘプテン等を例示することができる。

【0020】環状オレフィン分子中に炭素-炭素二重結合を2つ以上有する一般式[II]で示される化合物の具体例としては、5-エチリデン-2-ノルボルネン、5-メチレン-2-ノルボルネン、5-イソプロピリデン-2-ノルボルネン、3-ビニルシクロヘキセン、4-ビニルシクロヘキセン、5-ビニルノルボルネン、5-アリルノルボルネン、5, 6-ジエチリデン-2-ノルボルネン、ジシクロペンタジエン、ジメチルシクロペンタジエン、2, 5-ノルボルナジエン等を例示することができ、一般式[III]で示される環状ポリエン化合物として1, 3-シクロペンタジエン、1, 3-シクロヘキサジエン、1, 4-シクロヘキサジエン、5-エチル-1, 3-シクロヘキサジエン、1, 3-シクロヘプタジエン、1, 3-シクロオクタジエン等をあげることができる。

【0021】(ロ)中の環状オレフィンの含有量は、0.01~20モル%が好ましく、より好ましくは0.05~15モル%であり、更に好ましくは0.1~10モル%であり、特に好ましくは0.15~5モル%である。環状オレフィンの含有量が過少であると得られる熱可塑性樹脂組成物を用いて成形した成形品の成形外観が劣る場合があり、一方環状オレフィンの含有量が過多であると得られる熱可塑性樹脂組成物を用いて成形した成形品の耐衝撃性に劣る場合がある。

【0022】(ロ)のオレフィンとしてプロピレン又はエチレン及びプロピレンを含むことができる。

【0023】(ロ)のオレフィンとしてのエチレンの含有量は、熱可塑性樹脂組成物の耐衝撃性及び耐低温性改質効果の観点からは、90モル%以下であることが好ましく、より好ましくは85モル%以下であり、更に好ましくは80モル%以下であり、特に好ましくは75モル%以下である。該範囲を外れると、オレフィン系共重合体がエチレン由来の結晶を含む場合があり、得られる熱可塑性樹脂組成物を用いて成形した成形品の耐衝撃性と剛性のバランスや特に低温における衝撃性に劣る場合がある。

【0024】一方、特に耐低温性が要求される場合には、(ロ)中のプロピレン含量が、90%以下であることが好ましく、より好ましくは80%以下であり、更に好ましくは70%以下であり、特に好ましくは60%以下であり、最も好ましくは50%以下である。該範囲を外れると、得られる熱可塑性樹脂組成物を用いて成形した成形品の低温における衝撃性に劣る場合がある。

【0025】(ロ)は下記式の関係を充足することが好ましい。

$$0.10 \leq [y / (x + y)] \leq 0.90$$

より好ましくは、 $0.15 \leq [y / (x + y)] \leq 0.80$ であり、更に好ましくは、 $0.20 \leq [y / (x + y)] \leq 0.70$ であり、特に好ましくは、 $0.25 \leq [y / (x + y)] \leq 0.60$ である。

【0026】上記の範囲を外れると、得られる熱可塑性樹脂組成物を用いて成形した成形品の耐衝撃性と剛性のバランスに劣る場合がある。なお、上記式において、xは共重合体中のエチレンのモル含量を表し、yは共重合体中の炭素数4~20の α -オレフィンのモル含量の合計を表す。

【0027】(ロ)は、温度135℃におけるテトラリン溶媒による極限粘度 $[\eta]$ が0.3~1.0であることが好ましく、より好ましくは0.5~7であり、更に好ましくは0.7~5である。該極限粘度が低すぎると、得られる熱可塑性樹脂組成物を用いて成形した成形品の耐衝撃性が劣る場合がある。また、該極限粘度が高すぎると、得られる熱可塑性樹脂組成物を用いて成形した成形品の成形外観や剛性に劣る場合がある。極限粘度

$[\eta]$ の測定は、135℃テトラリン中でウペローデ粘度計を用いて行う。サンプルは300mgを100mlテトラリンに溶解し、3mg/mlの溶液を調製する。更に当該溶液を1/2、1/3、1/5に希釈し、それぞれを135℃(±0.1℃)の恒温油槽中で測定する。それぞれの濃度で3回繰り返し測定し、得られた値を平均して用いる。

【0028】(ロ)は、ゲル・パーミエーション・クロマトグラフィー(GPC)で測定される分子量分布(Mw/Mn)が3以下であることが好ましい。分子量分布が広すぎる場合には、該共重合体を改質剤として用いた場合、得られる熱可塑性樹脂組成物の耐衝撃性が劣る場合がある。分子量分布はゲルパーミエーションクロマトグラフ(GPC)法(たとえば、Waters社製、150℃/GPC装置)により行う。溶出温度は140℃、使用カラムは、たとえば昭和電工社製Shodex Packed Column A-80M、分子量標準物質はポリスチレン(たとえば、東ソー社製、分子量68-8,400,000)を用いる。得られたポリスチレン換算重量平均分子量(Mw)、数平均分子量(Mn)、更にこの比(Mw/Mn)を分子量分布とする。

測定サンプルは約5mgの重合体を5mlのo-ジクロ

ロベンゼンに溶解し、約 1 mg/ml の濃度とする。得られたサンプル溶液の $400 \mu\text{l}$ をインジェクションし、溶出溶媒流速は 1.0 ml/min とし、屈折率検出器にて検出する。

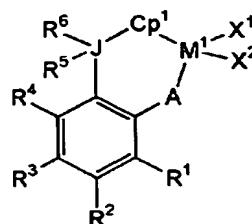
【0029】(ロ)は、示差走査熱量計(DSC)で測定した場合に、結晶の融解に基づく 1 J/g 以上のピーク及び結晶化に基づく 1 J/g 以上のピークのいずれをも有しないことが好ましい。かかるピークを有する場合、得られる熱可塑性樹脂組成物を用いて成形した成形品の剛性が劣る場合がある。示差走査熱量計は、たとえばセイコー電子工業社製 DSC 220C を用い、昇温及び降温過程のいずれも 10°C/min の速度で測定を行う。

【0030】(ロ)は、公知のチーグラ-ナッタ型触媒又はメタロセン系触媒を用いて製造することができる。高分子量、狭分子量分布、狭組成分布の共重合体が得られる点から、メタロセン系触媒を用いることが好ましく、中でもシクロペンタジエニル骨格を少なくとも1個有する周期表第4A族～第6A族の遷移金属錯体が好ましい。メタロセン系触媒の具体例としては、たとえば特開平9-12635号公報や特開平9-151205号公報記載のメタロセン系触媒をあげることができる。

【0031】特に(ロ)はプロピレン及び／又は炭素数4～20の α -オレフィン側鎖の配列がアタクチック構造であることが好ましい。アタクチック構造でない場合には、該共重合体を改質剤として用いた場合、得られる熱可塑性樹脂組成物の耐衝撃性と剛性のバランスが劣る場合がある。該共重合体中の立体規則性をアタクチック構造にするには、エチレン、プロピレン及び炭素数4～20の α -オレフィンからなる群から選ばれた二種以上のオレフィンであって、該選ばれたオレフィンの炭素数の合計が6以上である二種以上のオレフィン、並びに任意に環状オレフィンをシクロペンタジエニル骨格を少なくとも1個有する周期表第4A族～第6A族の非立体特異性構造である遷移金属錯体の存在下共重合することにより製造し得る。非立体特異性構造である遷移金属錯体とは、Cs対掌及びCn対掌(nは1以上の整数)を有さないことを意味する。

【0032】更に(ロ)は、エチレン、プロピレン及び炭素数4～20の α -オレフィンからなる群から選ばれた二種以上のオレフィンであって、該選ばれたオレフィンの炭素数の合計が6以上である二種以上のオレフィン、並びに任意に環状オレフィンを、下記(A)と、下記(B)及び／又は下記(C)とを用いてなるオレフィン重合用触媒の存在下で共重合することにより、最適に製造し得る。

(A): 下記一般式[I]で表される遷移金属錯体



[I]

(式中、 M^1 は元素の周期律表の第4族の遷移金属原子を示し、Aは元素の周期律表の第16族の原子を示し、Jは元素の周期律表の第14族の原子を示す。 Cp^1 はシクロペンタジエン形アニオン骨格を有する基を示す。 X^1 、 X^2 、 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 R^5 及び R^6 はそれぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、アルキル基、アラルキル基、アリール基、置換シリル基、アルコキシ基、アラルキルオキシ基、アリールオキシ基又は2置換アミノ基を示す。 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 R^5 及び R^6 は任意に結合して環を形成してもよい。)

(B): 下記(B1)～(B3)から選ばれる1種以上のアルミニウム化合物

(B1) 一般式 $E^1 \cdot AlZ_m$ で示される有機アルミニウム化合物

(B2) 一般式 $\{ -Al(E^2) - O - \}_n$ で示される構造を有する環状のアルミノキサン

(B3) 一般式 $E^3 \{ -Al(E^3) - O - \}_n \cdot AlE^3$ で示される構造を有する線状のアルミノキサン

(但し、 E^1 、 E^2 及び E^3 は、それぞれ炭化水素基であり、全ての E^1 、全ての E^2 及び全ての E^3 は同じであっても異なってもよい。Zは水素原子又はハロゲン原子を表し、全てのZは同じであっても異なってもよい。aは $0 < a \leq 3$ を満足する数を、bは2以上の整数を、cは1以上の整数を表す。)

(C): 下記(C1)～(C3)のいずれかのホウ素化合物

(C1) 一般式 $BQ^1Q^2Q^3$ で表されるホウ素化合物、

(C2) 一般式 $G^+ (BQ^1Q^2Q^3Q^4)^-$ で表されるホウ素化合物、

(C3) 一般式 $(L-H)^+ (BQ^1Q^2Q^3Q^4)^-$ で表されるホウ素化合物

(但し、Bは3価の原子価状態のホウ素原子であり、 $Q^1 \sim Q^4$ はハロゲン原子、炭化水素基、ハロゲン化炭化水素基、置換シリル基、アルコキシ基又は2置換アミノ基であり、それらは同じであっても異なってもよい。 G^+ は無機又は有機のカチオンであり、Lは中性ルイス塩基であり、 $(L-H)^+$ はブレンステッド酸である。)

【0033】以下、上記の製造法について、更に詳しく説明する。

【0034】(A) 遷移金属錯体について説明する。

【0035】一般式[I]において、 M^1 で示される遷

移金属原子とは、元素の周期律表（IUPAC無機化学命名法改訂版1989）の第4族の遷移金属元素を示し、たとえばチタニウム原子、ジルコニウム原子、ハフニウム原子などがあげられる。好ましくはチタニウム原子又はジルコニウム原子である。

【0036】一般式〔I〕においてAとして示される元素の周期律表の第16族の原子としては、たとえば酸素原子、硫黄原子、セレン原子などがあげられ、好ましくは酸素原子である。

【0037】一般式〔I〕においてJとして示される元素の周期律表の第14族の原子としては、たとえば炭素原子、ケイ素原子、ゲルマニウム原子などがあげられ、好ましくは炭素原子又はケイ素原子である。

【0038】置換基 Cp^1 として示されるシクロペンタジエン形アニオン骨格を有する基としては、たとえば η^5- （置換）シクロペンタジエニル基、 η^5- （置換）インデニル基、 η^5- （置換）フルオレニル基などである。具体的に例示すれば、たとえば η^5- シクロペンタジエニル基、 η^5- メチルシクロペンタジエニル基、 η^5- ジメチルシクロペンタジエニル基、 η^5- トリメチルシクロペンタジエニル基、 η^5- テトラメチルシクロペンタジエニル基、 η^5- エチルシクロペンタジエニル基、 η^5-n -プロピルシクロペンタジエニル基、 η^5- イソプロピルシクロペンタジエニル基、 η^5-n -ブチルシクロペンタジエニル基、 η^5-sec -ブチルシクロペンタジエニル基、 η^5-tert -ブチルシクロペンタジエニル基、 η^5-n -ペンチルシクロペンタジエニル基、 η^5- ネオペンチルシクロペンタジエニル基、 η^5-n -ヘキシルシクロペンタジエニル基、 η^5-n -オクチルシクロペンタジエニル基、 η^5- フェニルシクロペンタジエニル基、 η^5-n -ナフチルシクロペンタジエニル基、 η^5- トリメチルシリルシクロペンタジエニル基、 η^5- トリエチルシリルシクロペンタジエニル基、 η^5-tert -ブチルジメチルシリルシクロペンタジエニル基、 η^5- インデニル基、 η^5- メチルインデニル基、 η^5- ジメチルインデニル基、 η^5- エチルインデニル基、 η^5-n -プロピルインデニル基、 η^5- イソプロピルインデニル基、 η^5-n -ブチルインデニル基、 η^5-sec -ブチルインデニル基、 η^5-tert -ブチルインデニル基、 η^5-n -ペンチルインデニル基、 η^5- ネオペンチルインデニル基、 η^5-n -ヘキシルインデニル基、 η^5-n -オクチルインデニル基、 η^5-n -デシルインデニル基、 η^5- フェニルインデニル基、 η^5- メチルフェニルインデニル基、 η^5-n -ナフチルインデニル基、 η^5- トリメチルシリルインデニル基、 η^5- トリエチルシリルインデニル基、 η^5-tert -ブチルジメチルシリルインデニル基、 η^5- テトラヒドロインデニル基、 η^5- フルオレニル基、 η^5- メチルフルオレニル基、 η^5- ジメチルフルオレニル基、 η^5- エチルフルオレニル基、 η^5- ジエチルフルオレニル基、 η^5-n

-プロピルフルオレニル基、 η^5- ジ- n -プロピルフルオレニル基、 η^5- イソプロピルフルオレニル基、 η^5- ジイソプロピルフルオレニル基、 η^5-n -ブチルフルオレニル基、 η^5-sec -ブチルフルオレニル基、 η^5-tert -ブチルフルオレニル基、 η^5- ジ- n -ブチルフルオレニル基、 η^5- ジ- sec -ブチルフルオレニル基、 η^5- ジ- $tert$ -ブチルフルオレニル基、 η^5-n -ペンチルフルオレニル基、 η^5- ネオペンチルフルオレニル基、 η^5-n -ヘキシルフルオレニル基、 η^5-n -オクチルフルオレニル基、 η^5-n -デシルフルオレニル基、 η^5-n -ドデシルフルオレニル基、 η^5- フェニルフルオレニル基、 η^5- ジ-フェニルフルオレニル基、 η^5- メチルフェニルフルオレニル基、 η^5-n -ナフチルフルオレニル基、 η^5- トリメチルシリルフルオレニル基、 η^5- ビス-トリメチルシリルフルオレニル基、 η^5- トリエチルシリルフルオレニル基、 η^5-tert -ブチルジメチルシリルフルオレニル基などがあげられ、好ましくは η^5- シクロペンタジエニル基、 η^5- メチルシクロペンタジエニル基、 η^5-tert -ブチルシクロペンタジエニル基、 η^5- テトラメチルシクロペンタジエニル基、 η^5- インデニル基、又は η^5- フルオレニル基である。

【0039】置換基 X^1 、 X^2 、 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 R^5 又は R^6 におけるハロゲン原子としては、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子などが例示され、好ましくは塩素原子又は臭素原子であり、より好ましくは塩素原子である。

【0040】置換基 X^1 、 X^2 、 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 R^5 又は R^6 におけるアルキル基としては、炭素原子数1～20のアルキル基が好ましく、たとえばメチル基、エチル基、 n -プロピル基、イソプロピル基、 n -ブチル基、 sec -ブチル基、 $tert$ -ブチル基、 n -ペンチル基、ネオペンチル基、アミル基、 n -ヘキシル基、 n -オクチル基、 n -デシル基、 n -ドデシル基、 n -ペンタデシル基、 n -エイコシル基などがあげられ、より好ましくはメチル基、エチル基、イソプロピル基、 $tert$ -ブチル基又はアミル基である。

【0041】これらのアルキル基はいずれも、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子などのハロゲン原子で置換されていてもよい。ハロゲン原子で置換された炭素原子数1～20のアルキル基としては、たとえばフルオロメチル基、ジフルオロメチル基、トリフルオロメチル基、クロロメチル基、ジクロロメチル基、トリクロロメチル基、プロモメチル基、ジプロモメチル基、トリプロモメチル基、ヨードメチル基、ジヨードメチル基、トリヨードメチル基、フルオロエチル基、ジフルオロエチル基、トリフルオロエチル基、テトラフルオロエチル基、ペンタフルオロエチル基、クロロエチル基、ジクロロエチル基、トリクロロエチル基、テトラクロロエチル基、ペンタクロロエチル基、プロモエチル基、ジプロモ

エチル基、トリプロモエチル基、テトラプロモエチル基、ペンタプロモエチル基、パーフルオロプロピル基、パーフルオロブチル基、パーフルオロペンチル基、パーフルオロヘキシル基、パーフルオロオクチル基、パーフルオロドデシル基、パーフルオロペンタデシル基、パーフルオロエイコシル基、パークロロプロピル基、パークロロブチル基、パークロロペンチル基、パークロロヘキシル基、パークロロオクチル基、パークロロドデシル基、パークロロペンタデシル基、パークロロエイコシル基、パーブロモプロピル基、パーブロモブチル基、パーブロモペンチル基、パーブロモヘキシル基、パーブロモオクチル基、パーブロモドデシル基、パーブロモペンタデシル基、パーブロモエイコシル基などがあげられる。

【0042】またこれらのアルキル基はいずれも、メトキシ基、エトキシ基等のアルコキシ基、フェノキシ基などのアリールオキシ基又はベンジルオキシ基などのアラルキルオキシ基などで一部が置換されていてもよい。

【0043】置換基 X^1 、 X^2 、 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 R^5 又は R^6 におけるアラルキル基としては、炭素原子数7～20のアラルキル基が好ましく、たとえばベンジル基、(2-メチルフェニル)メチル基、(3-メチルフェニル)メチル基、(4-メチルフェニル)メチル基、(2,3-ジメチルフェニル)メチル基、(2,4-ジメチルフェニル)メチル基、(2,5-ジメチルフェニル)メチル基、(2,6-ジメチルフェニル)メチル基、(3,4-ジメチルフェニル)メチル基、(4,6-ジメチルフェニル)メチル基、(2,3,4-トリメチルフェニル)メチル基、(2,3,5-トリメチルフェニル)メチル基、(2,3,6-トリメチルフェニル)メチル基、(3,4,5-トリメチルフェニル)メチル基、(2,4,6-トリメチルフェニル)メチル基、(2,3,4,5-テトラメチルフェニル)メチル基、(2,3,4,6-テトラメチルフェニル)メチル基、(2,3,5,6-テトラメチルフェニル)メチル基、(ペンタメチルフェニル)メチル基、(エチルフェニル)メチル基、(n-プロピルフェニル)メチル基、(イソプロピルフェニル)メチル基、(n-ブチルフェニル)メチル基、(sec-ブチルフェニル)メチル基、(tert-ブチルフェニル)メチル基、(n-ペンチルフェニル)メチル基、(ネオペンチルフェニル)メチル基、(n-ヘキシルフェニル)メチル基、(n-オクチルフェニル)メチル基、(n-デシルフェニル)メチル基、(n-ドデシルフェニル)メチル基、ナフチルメチル基、アントラセニルメチル基などがあげられ、より好ましくはベンジル基である。

【0044】これらのアラルキル基はいずれも、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子などのハロゲン原子、メトキシ基、エトキシ基等のアルコキシ基、フェノキシ基などのアリールオキシ基又はベンジルオキシ基

などのアラルキルオキシ基などで一部が置換されていてもよい。

【0045】置換基 X^1 、 X^2 、 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 R^5 又は R^6 におけるアリール基としては、炭素原子数6～20のアリール基が好ましく、たとえばフェニル基、2-トリル基、3-トリル基、4-トリル基、2,3-キシリル基、2,4-キシリル基、2,5-キシリル基、2,6-キシリル基、3,4-キシリル基、3,5-キシリル基、2,3,4-トリメチルフェニル基、2,3,5-トリメチルフェニル基、2,3,6-トリメチルフェニル基、2,4,6-トリメチルフェニル基、3,4,5-トリメチルフェニル基、2,3,4,5-テトラメチルフェニル基、2,3,5,6-テトラメチルフェニル基、ペンタメチルフェニル基、エチルフェニル基、n-プロピルフェニル基、イソプロピルフェニル基、n-ブチルフェニル基、sec-ブチルフェニル基、tert-ブチルフェニル基、n-ペンチルフェニル基、ネオペンチルフェニル基、n-ヘキシルフェニル基、n-オクチルフェニル基、n-デシルフェニル基、n-ドデシルフェニル基、n-テトラデシルフェニル基、ナフチル基、アントラセニル基などがあげられ、より好ましくはフェニル基である。

【0046】これらのアリール基はいずれも、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子などのハロゲン原子、メトキシ基、エトキシ基等のアルコキシ基、フェノキシ基などのアリールオキシ基又はベンジルオキシ基などのアラルキルオキシ基などで一部が置換されていてもよい。

【0047】置換基 X^1 、 X^2 、 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 R^5 又は R^6 における置換シリル基とは炭化水素基で置換されたシリル基であって、ここで炭化水素基としては、たとえばメチル基、エチル基、n-プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、sec-ブチル基、tert-ブチル基、イソブチル基、n-ペンチル基、n-ヘキシル基、シクロヘキシル基などの炭素原子数1～10のアルキル基、フェニル基などのアリール基などがあげられる。かかる炭素原子数1～20の置換シリル基としては、たとえばメチルシリル基、エチルシリル基、フェニルシリル基などの炭素原子数1～20の1置換シリル基、ジメチルシリル基、ジエチルシリル基、ジフェニルシリル基などの炭素原子数2～20の2置換シリル基、トリメチルシリル基、トリエチルシリル基、トリ-n-プロピルシリル基、トリイソプロピルシリル基、トリ-n-ブチルシリル基、トリsec-ブチルシリル基、トリtert-ブチルシリル基、トリイソブチルシリル基、tert-ブチル-ジメチルシリル基、トリ-n-ペンチルシリル基、トリ-n-ヘキシルシリル基、トリシクロヘキシルシリル基、トリフェニルシリル基などの炭素原子数3～20の3置換シリル基などがあげら

れ、好ましくはトリメチルシリル基、tert-ブチルジメチルシリル基、又はトリフェニルシリル基である。

【0048】これらの置換シリル基はいずれもその炭化水素基が、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子などのハロゲン原子、メトキシ基、エトキシ基等のアルコキシ基、フェノキシ基などのアリアルオキシ基又はベンジルオキシ基などのアラルキルオキシ基などで一部が置換されていてもよい。

【0049】置換基 X^1 、 X^2 、 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 R^5 又は R^6 におけるアルコキシ基としては、炭素原子数1～20のアルコキシ基が好ましく、たとえばメトキシ基、エトキシ基、*n*-プロポキシ基、イソプロポキシ基、*n*-ブトキシ基、*sec*-ブトキシ基、*tert*-ブトキシ基、*n*-ペントキシ基、ネオペントキシ基、*n*-ヘキソキシ基、*n*-オクトキシ基、*n*-ドデソキシ基、*n*-ペンタデソキシ基、*n*-イコソキシ基などがある。より好ましくはメトキシ基、エトキシ基、又は*tert*-ブトキシ基である。

【0050】これらのアルコキシ基はいずれも、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子などのハロゲン原子、メトキシ基、エトキシ基等のアルコキシ基、フェノキシ基などのアリアルオキシ基又はベンジルオキシ基などのアラルキルオキシ基などで一部が置換されているもよい。

【0051】置換基 X^1 、 X^2 、 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 R^5 又は R^6 におけるアラルキルオキシ基としては、炭素原子数7~20のアラルキルオキシ基が好ましく、たとえばベンジルオキシ基、(2-メチルフエニル)メトキシ基、(3-メチルフエニル)メトキシ基、(4-メチルフエニル)メトキシ基、(2, 3-ジメチルフエニル)メトキシ基、(2, 4-ジメチルフエニル)メトキシ基、(2, 5-ジメチルフエニル)メトキシ基、(2, 6-ジメチルフエニル)メトキシ基、(3, 4-ジメチルフエニル)メトキシ基、(3, 5-ジメチルフエニル)メトキシ基、(2, 3, 4-トリメチルフエニル)メトキシ基、(2, 3, 5-トリメチルフエニル)メトキシ基、(2, 3, 6-トリメチルフエニル)メトキシ基、(2, 4, 5-トリメチルフエニル)メトキシ基、(2, 4, 6-トリメチルフエニル)メトキシ基、(3, 4, 5-トリメチルフエニル)メトキシ基、(2, 3, 4, 5-テトラメチルフエニル)メトキシ基、(2, 3, 4, 6-テトラメチルフエニル)メトキシ基、(2, 3, 5, 6-テトラメチルフエニル)メトキシ基、(ペンタメチルフエニル)メトキシ基、(エチルフエニル)メトキシ基、(n -プロピルフエニル)メトキシ基、(イソプロピルフエニル)メトキシ基、(n -ブチルフエニル)メトキシ基、(*sec*-ブチルフエニル)メトキシ基、(*tert*-ブチルフエニル)メトキシ基、(n -ヘキシルフエニル)メトキシ基、(n -オクチルフエニル)メトキシ基、(n -デシルフェニル)

ル) メトキシ基、(n-テトラデシルフェニル) メトキシ基、ナフチルメトキシ基、アントラセニルメトキシ基などがあげられ、より好ましくはベンジルオキシ基である。

【0052】これらのアラルキルオキシ基はいずれも、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子などのハロゲン原子、メトキシ基、エトキシ基等のアルコキシ基、フェノキシ基などのアリアルオキシ基又はベンジルオキシ基などのアラルキルオキシ基などで一部が置換されていてもよい。

【0053】置換基 X^1 、 X^2 、 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 R^5 又は R^6 におけるアリールオキシ基としては、炭素原子数6~20のアリールオキシ基が好ましく、たとえばフェノキシ基、2-メチルフェノキシ基、3-メチルフェノキシ基、4-メチルフェノキシ基、2, 3-ジメチルフェノキシ基、2, 4-ジメチルフェノキシ基、2, 5-ジメチルフェノキシ基、2, 6-ジメチルフェノキシ基、3, 4-ジメチルフェノキシ基、3, 5-ジメチルフェノキシ基、2, 3, 4-トリメチルフェノキシ基、2, 3, 5-トリメチルフェノキシ基、2, 3, 6-トリメチルフェノキシ基、2, 4, 5-トリメチルフェノキシ基、2, 4, 6-トリメチルフェノキシ基、3, 4, 5-トリメチルフェノキシ基、2, 3, 4, 5-テトラメチルフェノキシ基、2, 3, 4, 6-テトラメチルフェノキシ基、2, 3, 5, 6-テトラメチルフェノキシ基、ペンタメチルフェノキシ基、エチルフェノキシ基、*n*-プロピルフェノキシ基、イソプロピルフェノキシ基、*n*-ブチルフェノキシ基、*sec*-ブチルフェノキシ基、*tert*-ブチルフェノキシ基、*n*-ヘキシルフェノキシ基、*n*-オクチルフェノキシ基、*n*-デシルフェノキシ基、*n*-テトラデシルフェノキシ基、ナフトキシ基、アントラセノキシ基などがあげられる。

【0054】これらのアリールオキシ基はいずれも、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子などのハロゲン原子、メトキシ基、エトキシ基等のアルコキシ基、フェノキシ基などのアリールオキシ基又はベンジルオキシ基などのアラルキルオキシ基などで一部が置換されていてもよい。

【0055】置換基 X^1 、 X^2 、 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 R^5 又は R^6 における2置換アミノ基とは2つの炭化水素基で置換されたアミノ基であつて、ここで炭化水素基としては、たとえばメチル基、エチル基、*n*-プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、*sec*-ブチル基、*tert*-ブチル基、イソブチル基、*n*-ペンチル基、*n*-ヘキシル基、シクロヘキシル基などの炭素原子数1～10のアルキル基、フェニル基などの炭素原子数6～10のアリール基、炭素原子数7～10のアラルキル基などがあげられる。かかる炭素原子数1～10の炭化水素基で置換された2置換アミノ基としては、たとえばジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基、ジ-*n*-プロピルア

ミノ基、ジイソプロピルアミノ基、ジ-*n*-ブチルアミノ基、ジ-*sec*-ブチルアミノ基、ジ-*tert*-ブチルアミノ基、ジイソブチルアミノ基、*tert*-ブチルイソプロピルアミノ基、ジ-*n*-ヘキシルアミノ基、ジ-*n*-オクチルアミノ基、ジ-*n*-デシルアミノ基、ジフェニルアミノ基、ビス-*tert*-ブチルジメチルシリルアミノ基などあげられ、好ましくはジメチルアミノ基又はジエチルアミノ基である。

【0056】置換基 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 R^5 及び R^6 は、任意に結合して環を形成していてもよい。

【0057】好ましくは R^1 は、アルキル基、アラルキル基、アリーール基又は置換シリル基である。

【0058】好ましくは X^1 及び X^2 は、それぞれ独立にハロゲン原子、アルキル基、アラルキル基、アルコキシ基、アリーールオキシ基又は2置換アミノ基であり、更に好ましくはハロゲン原子である。

【0059】かかる遷移金属錯体(A)としては、たとえばメチレン(シクロペンタジエニル)(3,5-ジメチル-2-フェノキシ)チタニウムジクロライド、メチレン(シクロペンタジエニル)(3-*tert*-ブチル-2-フェノキシ)チタニウムジクロライド、メチレン(シクロペンタジエニル)(3-*tert*-ブチル-5-メチル-2-フェノキシ)チタニウムジクロライド、メチレン(シクロペンタジエニル)(3-フェニル-2-フェノキシ)チタニウムジクロライド、メチレン(シクロペンタジエニル)(3-*tert*-ブチルジメチルシリル-5-メチル-2-フェノキシ)チタニウムジクロライド、メチレン(シクロペンタジエニル)(3-トリメチルシリル-5-メチル-2-フェノキシ)チタニウムジクロライド、メチレン(シクロペンタジエニル)(3-*tert*-ブチル-5-メトキシ-2-フェノキシ)チタニウムジクロライド、メチレン(シクロペンタジエニル)(3-*tert*-ブチル-5-クロロ-2-フェノキシ)チタニウムジクロライド、

【0060】メチレン(メチルシクロペンタジエニル)(3,5-ジメチル-2-フェノキシ)チタニウムジクロライド、メチレン(メチルシクロペンタジエニル)(3-*tert*-ブチル-2-フェノキシ)チタニウムジクロライド、メチレン(メチルシクロペンタジエニル)(3-*tert*-ブチル-5-メチル-2-フェノキシ)チタニウムジクロライド、メチレン(メチルシクロペンタジエニル)(3-フェニル-2-フェノキシ)チタニウムジクロライド、メチレン(メチルシクロペンタジエニル)(3-*tert*-ブチルジメチルシリル-5-メチル-2-フェノキシ)チタニウムジクロライド、メチレン(メチルシクロペンタジエニル)(3-トリメチルシリル-5-メチル-2-フェノキシ)チタニウムジクロライド、メチレン(メチルシクロペンタジエニル)(3-*tert*-ブチル-5-メトキシ-2-フェ

ノキシ)チタニウムジクロライド、メチレン(メチルシクロペンタジエニル)(3-*tert*-ブチル-5-クロロ-2-フェノキシ)チタニウムジクロライド、

【0061】メチレン(*tert*-ブチルシクロペンタジエニル)(3,5-ジメチル-2-フェノキシ)チタニウムジクロライド、メチレン(*tert*-ブチルシクロペンタジエニル)(3-*tert*-ブチル-2-フェノキシ)チタニウムジクロライド、メチレン(*tert*-ブチルシクロペンタジエニル)(3-*tert*-ブチル-5-メチル-2-フェノキシ)チタニウムジクロライド、メチレン(*tert*-ブチルシクロペンタジエニル)(3-フェニル-2-フェノキシ)チタニウムジクロライド、メチレン(*tert*-ブチルシクロペンタジエニル)(3-*tert*-ブチルジメチルシリル-5-メチル-2-フェノキシ)チタニウムジクロライド、メチレン(*tert*-ブチルシクロペンタジエニル)(3-トリメチルシリル-5-メチル-2-フェノキシ)チタニウムジクロライド、メチレン(*tert*-ブチルシクロペンタジエニル)(3-*tert*-ブチル-5-メトキシ-2-フェノキシ)チタニウムジクロライド、メチレン(*tert*-ブチルシクロペンタジエニル)(3-*tert*-ブチル-5-クロロ-2-フェノキシ)チタニウムジクロライド、

【0062】メチレン(テトラメチルシクロペンタジエニル)(3,5-ジメチル-2-フェノキシ)チタニウムジクロライド、メチレン(テトラメチルシクロペンタジエニル)(3-*tert*-ブチル-2-フェノキシ)チタニウムジクロライド、メチレン(テトラメチルシクロペンタジエニル)(3-*tert*-ブチル-5-メチル-2-フェノキシ)チタニウムジクロライド、メチレン(テトラメチルシクロペンタジエニル)(3-フェニル-2-フェノキシ)チタニウムジクロライド、メチレン(テトラメチルシクロペンタジエニル)(3-*tert*-ブチルジメチルシリル-5-メチル-2-フェノキシ)チタニウムジクロライド、メチレン(テトラメチルシクロペンタジエニル)(3-トリメチルシリル-5-メチル-2-フェノキシ)チタニウムジクロライド、メチレン(テトラメチルシクロペンタジエニル)(3-*tert*-ブチル-5-メトキシ-2-フェノキシ)チタニウムジクロライド、メチレン(テトラメチルシクロペンタジエニル)(3-*tert*-ブチル-5-クロロ-2-フェノキシ)チタニウムジクロライド、

【0063】メチレン(トリメチルシリルシクロペンタジエニル)(3,5-ジメチル-2-フェノキシ)チタニウムジクロライド、メチレン(トリメチルシリルシクロペンタジエニル)(3-*tert*-ブチル-2-フェノキシ)チタニウムジクロライド、メチレン(トリメチルシリルシクロペンタジエニル)(3-*tert*-ブチル-5-メチル-2-フェノキシ)チタニウムジクロライド、メチレン(トリメチルシリルシクロペンタジエニル)(3-*tert*-ブチル-5-メトキシ-2-フェ

10

20

30

40

50

10

20

30

40

【0068】イソプロピリデン（テトラメチルシクロペンタジエニル）（3，5-ジメチル-2-フェノキシ）チタニウムジクロライド、イソプロピリデン（テトラメチルシクロペンタジエニル）（3-tert-ブチル-2-フェノキシ）チタニウムジクロライド、イソプロピリデン（テトラメチルシクロペンタジエニル）（3-tert-ブチル-5-メチル-2-フェノキシ）チタニウムジクロライド、イソプロピリデン（テトラメチルシクロペンタジエニル）（3-フェニル-2-フェノキシ）チタニウムジクロライド、イソプロピリデン（テトラメチルシクロペンタジエニル）（3-tert-ブチルジメチルシリル-5-メチル-2-フェノキシ）チタ

【0073】ジフェニルメチレン (tert-ブチルシクロペンタジエニル) (3, 5-ジメチル-2-フェノキシ) チタニウムジクロライド、ジフェニルメチレン (tert-ブチルシクロペンタジエニル) (3-tert-ブチル-2-フェノキシ) チタニウムジクロライド、ジフェニルメチレン (tert-ブチルシクロペンタジエニル) (3-tert-ブチル-5-メチル-2-フェノキシ) チタニウムジクロライド、ジフェニルメチレン (tert-ブチルシクロペンタジエニル) (3-フェニル-2-フェノキシ) チタニウムジクロライド、ジフェニルメチレン (tert-ブチルシクロペンタジエニル) (3-tert-ブチルジメチルシリル-5-メチル-2-フェノキシ) チタニウムジクロライド、ジフェニルメチレン (tert-ブチルシクロペン

タジエニル) (3-トリメチルシリル-5-メチル-2-フェノキシ) チタニウムジクロライド、ジフェニルメチレン (tert-ブチルシクロペンタジエニル) (3-tert-ブチル-5-メトキシ-2-フェノキシ) チタニウムジクロライド、ジフェニルメチレン (tert-ブチルシクロペンタジエニル) (3-tert-ブチル-5-クロロ-2-フェノキシ) チタニウムジクロライド、

【0074】ジフェニルメチレン (テトラメチルシクロペンタジエニル) (3, 5-ジメチル-2-フェノキシ) チタニウムジクロライド、ジフェニルメチレン (テトラメチルシクロペンタジエニル) (3-tert-ブチル-2-フェノキシ) チタニウムジクロライド、ジフェニルメチレン (テトラメチルシクロペンタジエニル) (3-tert-ブチル-5-メチル-2-フェノキシ) チタニウムジクロライド、ジフェニルメチレン (テトラメチルシクロペンタジエニル) (3-フェニル-2-フェノキシ) チタニウムジクロライド、ジフェニルメチレン (テトラメチルシクロペンタジエニル) (3-tert-ブチルジメチルシリル-5-メチル-2-フェノキシ) チタニウムジクロライド、ジフェニルメチレン (テトラメチルシクロペンタジエニル) (3-トリメチルシリル-5-メチル-2-フェノキシ) チタニウムジクロライド、ジフェニルメチレン (テトラメチルシクロペンタジエニル) (3-tert-ブチル-5-メトキシ-2-フェノキシ) チタニウムジクロライド、ジフェニルメチレン (テトラメチルシクロペンタジエニル) (3-tert-ブチル-5-クロロ-2-フェノキシ) チタニウムジクロライド、

【0075】ジフェニルメチレン (トリメチルシリルシクロペンタジエニル) (3, 5-ジメチル-2-フェノキシ) チタニウムジクロライド、ジフェニルメチレン (トリメチルシリルシクロペンタジエニル) (3-tert-ブチル-2-フェノキシ) チタニウムジクロライド、ジフェニルメチレン (トリメチルシリルシクロペンタジエニル) (3-tert-ブチル-5-メチル-2-フェノキシ) チタニウムジクロライド、ジフェニルメチレン (トリメチルシリルシクロペンタジエニル) (3-tert-ブチルジメチルシリル-5-メチル-2-フェノキシ) チタニウムジクロライド、ジフェニルメチレン (トリメチルシリルシクロペンタジエニル) (3-トリメチルシリル-5-メチル-2-フェノキシ) チタニウムジクロライド、ジフェニルメチレン (トリメチルシリルシクロペンタジエニル) (3-tert-ブチル-5-メトキシ-2-フェノキシ) チタニウムジクロライド、ジフェニルメチレン (トリメチルシリルシクロペンタジエニル) (3-tert-ブチル-5-クロロ-2-フェノキシ) チタニウムジクロ

ライド、

【0076】ジフェニルメチレン (フルオレニル)

(3, 5-ジメチル-2-フェノキシ) チタニウムジクロライド、ジフェニルメチレン (フルオレニル) (3-tert-ブチル-2-フェノキシ) チタニウムジクロライド、ジフェニルメチレン (フルオレニル) (3-tert-ブチル-5-メチル-2-フェノキシ) チタニウムジクロライド、ジフェニルメチレン (フルオレニル) (3-フェニル-2-フェノキシ) チタニウムジクロライド、ジフェニルメチレン (フルオレニル) (3-tert-ブチルジメチルシリル-5-メチル-2-フェノキシ) チタニウムジクロライド、ジフェニルメチレン (フルオレニル) (3-トリメチルシリル-5-メチル-2-フェノキシ) チタニウムジクロライド、ジフェニルメチレン (フルオレニル) (3-tert-ブチル-5-メトキシ-2-フェノキシ) チタニウムジクロライド、ジフェニルメチレン (フルオレニル) (3-tert-ブチル-5-クロロ-2-フェノキシ) チタニウムジクロライドなどや、これらの化合物のチタニウムをジルコニウム、又はハフニウムに変更した化合物、ジクロライドをジブロミド、ジアイオダイド、ビス (ジメチルアミド)、ビス (ジエチルアミド)、ジ-n-ブトキシド、又はジイソプロポキシドに変更した化合物、(シクロペンタジエニル) を (ジメチルシクロペンタジエニル)、(トリメチルシクロペンタジエニル)、(n-ブチルシクロペンタジエニル)、(tert-ブチルジメチルシリルシクロペンタジエニル)、又は (インデニル) に変更した化合物、(3, 5-ジメチル-2-フェノキシ) を (2-フェノキシ)、(3-メチル-2-フェノキシ)、(3, 5-ジ-tert-ブチル-2-フェノキシ)、(3-フェニル-5-メチル-2-フェノキシ)、(3-tert-ブチルジメチルシリル-2-フェノキシ)、又は (3-トリメチルシリル-2-フェノキシ) に変更した化合物などといった一般式 [I] における J が炭素原子である遷移金属錯体ならびに、

【0077】ジメチルシリル (シクロペンタジエニル) (2-フェノキシ) チタニウムジクロライド、ジメチルシリル (シクロペンタジエニル) (3-メチル-2-フェノキシ) チタニウムジクロライド、ジメチルシリル (シクロペンタジエニル) (3, 5-ジメチル-2-フェノキシ) チタニウムジクロライド、ジメチルシリル (シクロペンタジエニル) (3-tert-ブチル-2-フェノキシ) チタニウムジクロライド、ジメチルシリル (シクロペンタジエニル) (3-tert-ブチル-5-メチル-2-フェノキシ) チタニウムジクロライド、ジメチルシリル (シクロペンタジエニル) (3, 5-ジ-tert-ブチル-2-フェノキシ) チタニウムジクロライド、ジメチルシリル (シクロペンタジエニル) (5-メチル-3-フェニル-2-フェノキシ) チタニウムジクロライド、ジメチルシリル (シクロペンタ

10

20

30

10

20

50

50

【0084】ジメチルシリル（フルオレニル）（2-フェノキシ）チタニウムジクロライド、ジメチルシリル（フルオレニル）（3-メチル-2-フェノキシ）チタニウムジクロライド、ジメチルシリル（フルオレニル）（3, 5-ジメチル-2-フェノキシ）チタニウムジクロライド、ジメチルシリル（フルオレニル）（3-tert-ブチル-2-フェノキシ）チタニウムジクロライド、ジメチルシリル（フルオレニル）（3-tert-ブチル-5-メチル-2-フェノキシ）チタニウムジクロライド、ジメチルシリル（フルオレニル）（3, 5-ジ-tert-ブチル-2-フェノキシ）チタニウムジクロライド、ジメチルシリル（フルオレニル）（5-メチル-3-フェニル-2-フェノキシ）チタニウムジクロライド、ジメチルシリル（フルオレニル）（3-tert-ブチルジメチルシリル-5-メチル-2-フェノキシ）チタニウムジクロライド、ジメチルシリル（フルオレニル）（5-メチル-3-トリメチルシリル-2-フェノキシ）チタニウムジクロライド、ジメチルシリル（フルオレニル）（3-tert-ブチル-5-メトキ

シ-2-フェノキシ) チタニウムジクロライド、ジメチルシリル (フルオレニル) (3-tert-ブチル-5-クロロ-2-フェノキシ) チタニウムジクロライド、ジメチルシリル (フルオレニル) (3, 5-ジアミル-2-フェノキシ) チタニウムジクロライド、ジメチルシリル (テトラメチルシクロペンタジエニル) (1-ナフトキシ-2-イル) チタニウムジクロライドなどや、これらの化合物の (シクロペンタジエニル) を (ジメチルシクロペンタジエニル)、(トリメチルシクロペンタジエニル)、(エチルシクロペンタジエニル)、(n-プロピルシクロペンタジエニル)、(イソプロピルシクロペンタジエニル)、(sec-ブチルシクロペンタジエニル)、(イソブチルシクロペンタジエニル)、(tert-ブチルジメチルシリルシクロペンタジエニル)、(フェニルシクロペンタジエニル)、(メチルインデニル)、又は (フェニルインデニル) に変更した化合物、(2-フェノキシ) を (3-フェニル2-フェノキシ)、(3-トリメチルシリル-2-フェノキシ)、又は (3-tert-ブチルジメチルシリル-2-フェノキシ) に変更した化合物、ジメチルシリルをジエチルシリル、ジフェニルシリル、又はジメトキシシリルに変更した化合物、チタニウムをジルコニウム、又はハフニウムに変更した化合物、ジクロライドをジプロミド、ジアイオダイド、ビス (ジメチルアミド)、ビス (ジエチルアミド)、ジ-n-ブトキシド、又はジイソプロポキシドに変更した化合物といった一般式 [I] における J が炭素原子以外の元素の周期律表の第14族の原子である遷移金属錯体があげられる。

【0085】上記一般式 [I] で表される遷移金属錯体は、たとえば下記の方法により合成することができる。

【0086】すなわち、まず、オルト位がハロゲン化されたアルコキシベンゼン化合物と、ハロゲン化された第14族原子で置換されたシクロペンタジエン化合物とを、有機アルカリ金属もしくは金属マグネシウムの存在下に反応させることにより、シクロペンタジエン骨格を有する基とアルコキシベンゼン骨格を有する基とが第14族原子で連結された構造の化合物が得られる。ついで、該化合物を塩基で処理した後、遷移金属のハロゲン化物、炭化水素化合物、炭化水素オキシ化合物等と反応させることにより、上記一般式 [I] で表される遷移金属錯体を合成することができる。

【0087】(B) アルミニウム化合物について説明する。

【0088】アルミニウム化合物 (B) としては、下記 (B1) ~ (B3) から選ばれる1種以上のアルミニウム化合物である。

(B1) 一般式 $E^1 \cdot AlZ_n$ で示される有機アルミニウム化合物

(B2) 一般式 $\{-Al(E^2)-O-\}$ で示される構造を有する環状のアルミノキサン

(B3) 一般式 $E^3 \{-Al(E^3)-O-\} \cdot AlE^3$ で示される構造を有する線状のアルミノキサン

(但し、 E^1 、 E^2 、及び E^3 は、それぞれ炭化水素基であり、全ての E^1 、全ての E^2 及び全ての E^3 は同じであっても異なってもよい。 Z は水素原子又はハロゲン原子を表し、全ての Z は同じであっても異なってもよい。 a は $0 < a \leq 3$ を満足する数を、 b は2以上の整数を、 c は1以上の整数を表す。)

【0089】 E^1 、 E^2 、又は E^3 における炭化水素基としては、炭素数1~8の炭化水素基が好ましく、アルキル基がより好ましい。

【0090】一般式 $E^1 \cdot AlZ_n$ で示される有機アルミニウム化合物 (B1) の具体例としては、トリメチルアルミニウム、トリエチルアルミニウム、トリプロピルアルミニウム、トリイソブチルアルミニウム、トリヘキシルアルミニウム等のトリアルキルアルミニウム；ジメチルアルミニウムクロライド、ジエチルアルミニウムクロライド、ジプロピルアルミニウムクロライド、ジイソブチルアルミニウムクロライド、ジヘキシルアルミニウムクロライド等のジアルキルアルミニウムクロライド；メチルアルミニウムジクロライド、エチルアルミニウムジクロライド、プロピルアルミニウムジクロライド、イソブチルアルミニウムジクロライド、ヘキシルアルミニウムジクロライド等のアルキルアルミニウムジクロライド；ジメチルアルミニウムハイドライド、ジエチルアルミニウムハイドライド、ジプロピルアルミニウムハイドライド、ジイソブチルアルミニウムハイドライド、ジヘキシルアルミニウムハイドライド等のジアルキルアルミニウムハイドライド等を例示することができる。

【0091】好ましくは、トリアルキルアルミニウムであり、より好ましくは、トリエチルアルミニウム、又はトリイソブチルアルミニウムである。

【0092】一般式 $\{-Al(E^2)-O-\}$ で示される構造を有する環状のアルミノキサン (B2)、一般式 $E^3 \{-Al(E^3)-O-\} \cdot AlE^3$ で示される構造を有する線状のアルミノキサン (B3) における、 E^2 、 E^3 の具体例としては、メチル基、エチル基、ノルマルプロピル基、イソプロピル基、ノルマルブチル基、イソブチル基、ノルマルペンチル基、ネオペンチル基等のアルキル基を例示することができる。 b は2以上の整数であり、 c は1以上の整数である。好ましくは、 E^2 及び E^3 はメチル基、又はイソブチル基であり、 b は2~40、 c は1~40である。

【0093】上記のアルミノキサンは各種の方法で作られる。その方法については特に制限はなく、公知の方法に準じて作ればよい。たとえば、トリアルキルアルミニウム (たとえば、トリメチルアルミニウムなど) を適当な有機溶剤 (ベンゼン、脂肪族炭化水素など) に溶かした溶液を水と接触させて作る。また、トリアルキルアル

ミニウム（たとえば、トリメチルアルミニウムなど）を結晶水を含んでいる金属塩（たとえば、硫酸銅水和物など）に接触させて作る方法が例示できる。

【0094】(C) ホウ素化合物について説明する。

【0095】ホウ素化合物 (C) としては、(C1) 一般式 $BQ^1Q^2Q^3$ で表されるホウ素化合物、(C2) 一般式 $G^-(BQ^1Q^2Q^3Q^4)^-$ で表されるホウ素化合物、(C3) 一般式 $(L-H)^-(BQ^1Q^2Q^3Q^4)^-$ で表されるホウ素化合物のいずれかを用いることができる。

【0096】一般式 $BQ^1Q^2Q^3$ で表されるホウ素化合物 (C1) において、Bは3価の原子価状態のホウ素原子であり、 $Q^1 \sim Q^3$ はハロゲン原子、炭化水素基、ハロゲン化炭化水素基、置換シリル基、アルコキシ基又は2置換アミノ基であり、それらは同じであっても異なってもよい。 $Q^1 \sim Q^3$ は好ましくは、ハロゲン原子、1～20個の炭素原子を含む炭化水素基、1～20個の炭素原子を含むハロゲン化炭化水素基、1～20個の炭素原子を含む置換シリル基、1～20個の炭素原子を含むアルコキシ基又は2～20個の炭素原子を含むアミノ基であり、より好ましい $Q^1 \sim Q^3$ はハロゲン原子、1～20個の炭素原子を含む炭化水素基、又は1～20個の炭素原子を含むハロゲン化炭化水素基である。更に好ましくは $Q^1 \sim Q^3$ は、それぞれ少なくとも1個のフッ素原子を含む炭素原子数1～20のフッ素化炭化水素基であり、特に好ましくは $Q^1 \sim Q^3$ は、それぞれ少なくとも1個のフッ素原子を含む炭素原子数6～20のフッ素化アリール基である。

【0097】化合物 (C1) の具体例としては、トリス（ペンタフルオロフェニル）ボラン、トリス（2, 3, 5, 6-テトラフルオロフェニル）ボラン、トリス（2, 3, 4, 5-テトラフルオロフェニル）ボラン、トリス（3, 4, 5-トリフルオロフェニル）ボラン、トリス（2, 3, 4-トリフルオロフェニル）ボラン、フェニルビス（ペンタフルオロフェニル）ボラン等があげられるが、最も好ましくは、トリス（ペンタフルオロフェニル）ボランである。

【0098】一般式 $G^-(BQ^1Q^2Q^3Q^4)^-$ で表されるホウ素化合物 (C2) において、 G^- は無機又は有機のカチオンであり、Bは3価の原子価状態のホウ素原子であり、 $Q^1 \sim Q^4$ は上記の (C1) における $Q^1 \sim Q^3$ と同様である。

【0099】一般式 $G^-(BQ^1Q^2Q^3Q^4)^-$ で表される化合物における無機のカチオンである G^+ の具体例としては、フェロセニウムカチオン、アルキル置換フェロセニウムカチオン、銀陽イオンなどが、有機のカチオンである G^+ としては、トリフェニルメチルカチオンなどがあげられる。 G^+ として好ましくはカルベニウムカチオンであり、特に好ましくはトリフェニルメチルカチオンである。 $(BQ^1Q^2Q^3Q^4)^-$ としては、テトラキス

（ペンタフルオロフェニル）ボレート、テトラキス（2, 3, 5, 6-テトラフルオロフェニル）ボレート、テトラキス（2, 3, 4, 5-テトラフルオロフェニル）ボレート、テトラキス（3, 4, 5-トリフルオロフェニル）ボレート、フェニルトリス（ペンタフルオロフェニル）ボレート、テトラキス（3, 5-ビストリフルオロメチルフェニル）ボレートなどがあげられる。

10 【0100】これらの具体的な組み合わせとしては、フェロセニウムテトラキス（ペンタフルオロフェニル）ボレート、1, 1'-ジメチルフェロセニウムテトラキス（ペンタフルオロフェニル）ボレート、銀テトラキス（ペンタフルオロフェニル）ボレート、トリフェニルメチルテトラキス（ペンタフルオロフェニル）ボレート、トリフェニルメチルテトラキス（3, 5-ビストリフルオロメチルフェニル）ボレートなどをあげることができるが、最も好ましくは、トリフェニルメチルテトラキス（ペンタフルオロフェニル）ボレートである。

20 【0101】また、一般式 $(L-H)^-(BQ^1Q^2Q^3Q^4)^-$ で表されるホウ素化合物 (C3) においては、Lは中性ルイス塩基であり、 $(L-H)^-$ はブレンステッド酸であり、Bは3価の原子価状態のホウ素原子であり、 $Q^1 \sim Q^4$ は上記のルイス酸 (C1) における $Q^1 \sim Q^3$ と同様である。

【0102】一般式 $(L-H)^-(BQ^1Q^2Q^3Q^4)^-$ で表される化合物におけるブレンステッド酸である $(L-H)^-$ の具体例としては、トリアルキル置換アンモニウム、N, N-ジアルキルアニリニウム、ジアルキルアンモニウム、トリアリールホスホニウムなどがあげられ、 $(BQ^1Q^2Q^3Q^4)^-$ としては、前述と同様のものがあげられる。

30 【0103】これらの具体的な組み合わせとしては、トリエチルアンモニウムテトラキス（ペンタフルオロフェニル）ボレート、トリプロピルアンモニウムテトラキス（ペンタフルオロフェニル）ボレート、トリ（n-ブチル）アンモニウムテトラキス（ペンタフルオロフェニル）ボレート、トリ（n-ブチル）アンモニウムテトラキス（3, 5-ビストリフルオロメチルフェニル）ボレート、N, N-ジメチルアニリニウムテトラキス（ペンタフルオロフェニル）ボレート、N, N-ジエチルアニリニウムテトラキス（ペンタフルオロフェニル）ボレート、N, N-2, 4, 6-ペンタメチルアニリニウムテトラキス（ペンタフルオロフェニル）ボレート、N, N-ジメチルアニリニウムテトラキス（3, 5-ビストリフルオロメチルフェニル）ボレート、ジイソプロピルアンモニウムテトラキス（ペンタフルオロフェニル）ボレート、ジシクロヘキシルアンモニウムテトラキス（ペンタフルオロフェニル）ボレート、トリフェニルホスホニウムテトラキス（ペンタフルオロフェニル）ボレート、

トリ（メチルフェニル）ホスホニウムテトラキス（ペンタフルオロフェニル）ボレート、トリ（ジメチルフェニル）ホスホニウムテトラキス（ペンタフルオロフェニル）ボレートなどをあげることができるが、最も好ましくは、トリ（*n*-ブチル）アンモニウムテトラキス（ペンタフルオロフェニル）ボレート、もしくは、*N*、*N*-ジメチルアニリニウムテトラキス（ペンタフルオロフェニル）ボレートである。

【0104】共重合に際しては、一般式〔I〕で表される遷移金属錯体（A）と、上記（B）及び／又は上記（C）とを用いてなるオレフィン重合用触媒を用いる。

（A）、（B）2成分よりなるオレフィン重合用触媒を用いる際は、（B）としては、前記の環状のアルミノキサン（B2）及び／又は線状のアルミノキサン（B3）が好ましい。また他に好ましいオレフィン重合用触媒の態様としては、上記（A）、（B）及び（C）を用いてなるオレフィン重合用触媒があげられ、その際の該

（B）としては前記の（B1）が使用しやすい。

【0105】各成分の使用量は通常、（B）／（A）のモル比が0.1～10000で、好ましくは5～2000、（C）／（A）のモル比が0.01～100で、好ましくは0.5～10の範囲にあるように、各成分を用いることが望ましい。

【0106】各成分を溶液状態もしくは溶媒に懸濁状態で用いる場合の濃度は、重合反応器に各成分を供給する装置の性能などの条件により、適宜選択されるが、一般に、（A）が、通常0.01～500 $\mu\text{mol/g}$ で、より好ましくは、0.05～100 $\mu\text{mol/g}$ 、更に好ましくは、0.05～50 $\mu\text{mol/g}$ 、（B）が、Al原子換算で、通常0.01～10000 $\mu\text{mol/g}$ で、より好ましくは、0.1～5000 $\mu\text{mol/g}$ 、更に好ましくは、0.1～2000 $\mu\text{mol/g}$ 、（C）は、通常0.01～500 $\mu\text{mol/g}$ で、より好ましくは、0.05～200 $\mu\text{mol/g}$ 、更に好ましくは、0.05～100 $\mu\text{mol/g}$ の範囲にあるように各成分を用いることが望ましい。

【0107】（ロ）を製造するには、たとえば、ブタン、ペンタン、ヘキサン、ヘプタン、オクタン等の脂肪族炭化水素、ベンゼン、トルエン等の芳香族炭化水素、又はメチレンジクロライド等のハロゲン化炭化水素を溶媒として用いる溶媒重合、又はスラリー重合、ガス状のモノマー中での気相重合等が可能であり、また、連続重合、回分式重合のどちらでも可能である。重合温度は、-50℃～200℃の範囲を取り得るが、特に、-20℃～100℃の範囲が好ましく、重合圧力は、常圧～60 $\text{kg/cm}^2\text{G}$ が好ましい。重合時間は、一般的に、使用する触媒の種類、反応装置により適宜決定されるが、1分間～20時間の範囲を取ることができる。また、重合体の分子量を調節するために水素等の連鎖移動剤を添加することもできる。

【0108】（ハ）は無機充填材であり、具体的には、ガラスフレーク、ガラス繊維、カオリン、クレイ、シリカ、ガラスパール、ガラスビーズ、マイカ、タルク、炭酸カルシウム、酸化チタン、チタン酸カリウムウイスカー、硫酸バリウム、シラスパール、アエロジルなどをあげることができる。これらは、その一種を単独で用いてもよく、二種以上を併用してもよい。得られる熱可塑性樹脂組成物を用いて成形した成形品の耐衝撃性と剛性のバランスの観点からは、タルク、炭酸カルシウム、ガラス繊維の使用が特に好ましい。

【0109】本発明の熱可塑性樹脂組成物は、上記の（イ）30～92重量%、（ロ）3～50重量%及び（ハ）5～50重量%を含有する熱可塑性樹脂組成物であり、好ましくは（イ）50～90重量%、（ロ）4～40重量%及び（ハ）6～40重量%を含有する熱可塑性樹脂組成物である。（イ）が過少であると得られる熱可塑性樹脂組成物を用いて成形した成形品の剛性が劣り、一方（イ）が過多であると得られる熱可塑性樹脂組成物を用いて成形した成形品の耐衝撃性が劣る。（ロ）が過少又は過多であると得られる熱可塑性樹脂組成物を用いて成形した成形品の成形外観が劣る。（ハ）が過少であると得られる熱可塑性樹脂組成物を用いて成形した成形品の剛性が劣り、一方（ハ）が過多であると得られる熱可塑性樹脂組成物を用いて成形した成形品の成形外観が劣る。

【0110】本発明の熱可塑性樹脂組成物には、付加成分として、酸化防止剤、帯電防止剤、耐候剤、紫外線吸収剤、スリッパ剤、着色剤、分散剤などの添加剤、カーボンブラックなどの着色剤あるいは、熱可塑性樹脂やエチレン-プロピレン共重合体ゴム、（ロ）の範疇に含まれないエチレン-1-ブテン、エチレン-1-ヘキセン、エチレン-1-オクテン等の組み合わせからなるエチレン- α -オレフィン共重合体ゴム、エチレン-プロピレン-非共役ジエン共重合体ゴム、（ロ）の範疇に含まれないエチレン- α -オレフィン-非共役ジエン共重合体ゴム、ポリブタジエン、スチレン-ブタジエンブロック共重合体ゴム、スチレン-ブタジエン-スチレンブロック共重合体ゴム、スチレン-ブタジエンランダム共重合体ゴム、部分水添スチレン-ブタジエン-スチレンブロック共重合体ゴム、部分水添スチレン-ブタジエンランダム共重合体ゴム、スチレン-イソブレンブロック共重合体ゴム、部分水添スチレン-イソブレンブロック共重合体ゴム、アクリロニトリル-ブタジエン共重合体ゴム、部分水添アクリロニトリル-ブタジエン共重合体ゴム、ブチルゴム、クロロプレンゴム、フッ素ゴム、クロロスルホン化ポリエチレン、シリコンゴム、ウレタンゴムなどを適宜配合することができる。

【0111】本発明の熱可塑性樹脂組成物は、必要に応じて、従来公知の方法により、イオウ架橋、過酸化物質架橋、金属イオン架橋、シラン架橋などの架橋を行うこと

もできる。

【0112】本発明の熱可塑性樹脂組成物を得るには、上記で説明した各成分を、通常の混練り装置、たとえばラバーミル、ブラベンダーミキサー、バンバリーミキサー、加圧ニーダー、ルーダー、二軸押出機等を用いて混練すればよい。混練り装置としては、密閉式及び開放式のいずれの装置であってもよいが、不活性ガスによって置換できる密閉式タイプの装置が好ましい。混練り温度は、混合された構成成分のすべてが熔融する温度であり、通常、160～250℃とされ、好ましくは180～240℃とされる。混練り時間は、混合された構成成分の種類、量及び混練り装置の種類に依存するため一概に論じられないが、加圧ニーダー、バンバリーミキサーなどの混練り装置を使用する場合には、通常、約3～10分程度とされる。なお、混練り工程においては、各構成成分を一括して混練りしてもよく、また一部の構成成分を混練りした後、残部の構成成分を添加して混練りを継続する多段分割混練り法を採用することもできる。

【0113】本発明の熱可塑性樹脂組成物は、射出成形、シート押出成形、真空成形、中空成形、プレス成形、異形押出成形、発泡成形などの各種成形法に適応し種々の成形品を得ることができる。

【0114】

【実施例】実施例により、本発明を説明する。

【I】測定方法

測定は、下記のとおり行った。

【0115】(1) 極限粘度 $[\eta]$

135℃テトラリン中でウベローデ粘度計を用いて行った。サンプルは300mgを100mlテトラリンに溶解し、3mg/mlの溶液を調整した。更に当該溶液を1/2、1/3、1/5に希釈し、それぞれを135℃(±0.1℃)の恒温油槽中で測定した。それぞれの濃度で3回繰り返し測定し、得られた値を平均して用いた。

【0116】(2) 示差走査熱量計(DSC)測定
示差走査熱量計(セイコー電子工業社製DSC220C)を用いて、昇温及び降温過程のいずれも10℃/分の速度で測定を行った。

【0117】(3) 共重合体中の各モノマーユニット含量の測定

【0118】(a) 検量線の作成

プロピレン単独重合体及びエチレン-1-ブテン共重合体の様々な混合比率の混合物をそれぞれ熱プレスして厚み0.05mmのフィルム状に成形した。赤外線分光計を用いてプロピレン単位由来ピーク(波数1150 cm^{-1})と1-ブテン単位由来ピーク(波数770 cm^{-1})との吸光度を求め、この吸光度に対して、該混合物における、プロピレン及び1-ブテン単位含有量をプロットした。これらのプロットから回帰直線を求め検量線とした。なお、プロピレン単独重合体及びエチレン-

1-ブテンの共重合体の混合物は、両者をトルエンに溶解した後、メタノールを加え、得られた沈殿物を乾燥して使用した。

【0119】(b) プロピレン/1-ブテン含量の測定
オレフィン共重合体を熱プレスして厚み0.05mmのフィルム状に成形し、ついで赤外分光計を用いて、プロピレン単位由来ピークと1-ブテン単位由来ピークとの吸光度を求め、上記方法より得られた検量線からオレフィン共重合体中のプロピレン及び1-ブテン単位含有量を算出した。

【0120】(c) ジシクロペンタジエン(DCPD)含量の測定

オレフィン共重合体を熱プレスして厚み0.5mmのフィルム状に成形し、ついで赤外分光計を用いて、ジシクロペンタジエン由来の(波数1611 cm^{-1})ピーク透過度を求め、オレフィン共重合体中のジシクロペンタジエン含量を算出した。

【0121】[II] 重合用触媒の調製

【0122】(1) 遷移金属錯体(ジメチルシリル(テトラメチルシクロペンタジエニル)(3-tert-ブチル-5-メチル-2-フェノキシ)チタニウムジクロライド)の合成

【0123】(a) 1-ブロモ-3-tert-ブチル-5-メチル-2-フェノールの合成

窒素雰囲気下、攪拌機を備えた500ml4つ口フラスコ中で、2-tert-ブチル-4-メチルフェノール20.1g(123mmol)をトルエン150mlに溶かし、続いてtert-ブチルアミン25.9ml(18.0g、246mmol)を加えた。この溶液を-70℃に冷却し、そこへ臭素10.5ml(32.6g、204mmol)を加えた。この溶液を-70℃に保ち、2時間攪拌した。その後、室温まで昇温し、1回につき、10%希塩酸100mlを加えて、3回洗浄した。洗浄後得られる有機層を、無水硫酸ナトリウムを用いて乾燥させ、エバポレーターを使用して溶媒を除去した後、シリカゲルカラムを用いて精製し、無色のオイルである1-ブロモ-3-tert-ブチル-5-メチル-2-フェノール18.4g(75.7mmol)を得た。収率は、62%であった。

【0124】(b) 1-ブロモ-3-tert-ブチル-2-メトキシ-5-メチルベンゼンの合成

窒素雰囲気下、攪拌機を備えた100ml4つ口フラスコ中で、上記(1)で合成した1-ブロモ-3-tert-ブチル-5-メチル-2-フェノール13.9g(57.2mmol)をアセトニトリル40mlに溶かし、続いて水酸化カリウム3.8g(67.9mmol)を加えた。更に、ヨウ化メチル17.8ml(40.6g、286mmol)を加え、12時間攪拌を続けた。その後、エバポレーターで溶媒を除去し、残さにヘキサン40mlを加え、ヘキサン可溶分を抽出した。

抽出は3回繰り返した。抽出分から溶媒を除去し、淡黄色のオイルである1-ブromo-3-tert-ブチル-2-メトキシ-5-メチルベンゼン 13.8 g (53.7 mmol) を得た。収率は、94%であった。

【0125】(c) (3-tert-ブチル-2-メトキシ-5-メチルフェニル)クロロジメチルシランの合成

テトラヒドロフラン (31.5 ml)、ヘキサン (139 ml) 及び上記 (2) で合成した1-ブromo-3-tert-ブチル-2-メトキシ-5-メチルベンゼン (45 g) からなる溶液に、-40℃で、n-ブチルリチウムの1.6モル/リットルのヘキサン溶液 (115 ml) を20分かけて滴下した。得られた混合物を-40℃にて1時間保温した後、テトラヒドロフラン (31.5 ml) を滴下した。ジクロロジメチルシラン (131 g) 及びヘキサン (306 ml) からなる溶液中に、-40℃で、上で得た混合物を滴下した。得られた混合物を室温まで2時間かけて昇温し、更に室温にて12時間攪拌した。反応混合物から減圧下に溶媒及び余剰のジクロロジメチルシランを留去し、残さからヘキサンを用いてヘキサン可溶分を抽出し、得られたヘキサン溶液から溶媒を留去して、淡黄色オイル状の (3-tert-ブチル-2-メトキシ-5-メチルフェニル)クロロジメチルシラン 41.9 g を得た。収率は、84%であった。

【0126】(d) (3-tert-ブチル-2-メトキシ-5-メチルフェニル)ジメチル(テトラメチルシクロペンタジエニル)シランの合成

上記 (c) で合成した (3-tert-ブチル-2-メトキシ-5-メチルフェニル)クロロジメチルシラン (5.24 g) 及びテトラヒドロフラン (50 ml) からなる溶液に、-35℃にて、テトラメチルシクロペンタジエニルリチウム (2.73 g) を添加し、2時間かけて室温まで昇温し、更に室温にて10時間攪拌した。得られた反応混合物から減圧下に溶媒を留去し、残さから、ヘキサンを用いてヘキサン可溶分を抽出し、得られたヘキサン溶液から減圧下に溶媒を留去して、黄色オイル状の (3-tert-ブチル-2-メトキシ-5-メチルフェニル)ジメチル(テトラメチルシクロペンタジエニル)シラン 6.69 g を得た。収率は、97%であった。

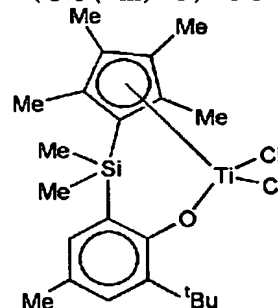
【0127】(e) ジメチルシリル(テトラメチルシクロペンタジエニル)(3-tert-ブチル-5-メチル-2-フェノキシ)チタニウムジクロライドの合成
上記 (d) で合成した (3-tert-ブチル-2-メトキシ-5-メチルフェニル)ジメチル(テトラメチルシクロペンタジエニル)シラン (10.04 g) とトルエン (100 ml) とトリエチルアミン (6.30 g) とからなる溶液に、-70℃で、n-ブチルリチウムの1.63モル/リットルのヘキサン溶液 (19.0 m

l) を滴下し、その後、2時間かけて室温まで昇温し、更に室温で12時間保温した。窒素雰囲気下に0℃で、四塩化チタニウム (4.82 g) のトルエン溶液 (50 ml) に、上で得られた混合物を滴下し、その後、1時間かけて室温まで昇温した後、10時間加熱還流した。反応混合物を濾過し、濾液から溶媒を留去し、残さをトルエン-ヘキサン混合溶媒から再結晶して、橙色柱状結晶のジメチルシリル(テトラメチルシクロペンタジエニル)(3-tert-ブチル-5-メチル-2-フェノキシ)チタニウムジクロライド 3.46 g を得た。収率は、27%であった。スペクトルデータは次のとおりであった。

¹H-NMR (CDCl₃) δ 0.57 (s, 6H)、1.41 (s, 9H)、2.15 (s, 6H)、2.34 (s, 6H)、2.38 (s, 3H)、7.15 (s, 1H)、7.18 (s, 1H)

¹³C-NMR (CDCl₃) δ 1.25、14.48、16.28、22.47、31.25、36.29、120.23、130.62、131.47、133.86、135.50、137.37、140.82、142.28、167.74

マスマスペクトル (CI, m/e) 458



【0128】[III] オレフィン系共重合体 (ロ) の重合

参考例1

攪拌羽根を備えた100LのSUS製重合器を用いて連続的にエチレン、プロピレン、1-ブテンの共重合を行った。すなわち、重合器下部から重合溶媒としてヘキサンを83L/時間の速度で連続的に供給した。一方、重合器上部から重合器中の重合液が100Lとなるように連続的に重合液を抜き出した。触媒としてジメチルシリル(テトラメチルシクロペンタジエニル)(3-tert-ブチル-5-メチル-2-フェノキシ)チタニウムジクロライド、トリフェニルメチルテトラキス(ペンタフルオロフェニル)ボレート、トリイソブチルアルミニウムをそれぞれ0.045g/時間、1.378g/時間、2.640g/時間の速度で重合器下部から重合器中に連続的に供給した。また、分子量調節を水素により行った。共重合反応は、重合器外部に取り付けられたジャケットに冷却水を循環させることで50℃で行った。重合器から抜き出した重合液に少量のエタノールを添加

して重合反応を停止させ、脱モノマー、水洗浄後、大量の水中でスチームにより溶媒を除去して共重合体を取り出し、80℃で昼夜減圧乾燥した。以上の操作により、エチレン-プロピレン-1-ブテン共重合体が2.83Kg/時間の速度で得られた。条件及び結果を表1に示した。

【0129】

【表1】

		実施例1
重合温度	℃	50
エチレン	Kg/h	4.0
プロピレン	Kg/h	1.7
1-ブテン	Kg/h	1.8
*1(a)	g/h	2.640
*2(b)	g/h	1.378
*3(c)	g/h	0.045
エチレン含量	mol%	63
プロピレン含量	mol%	10
1-ブテン含量	mol%	27
結晶融点	℃	なし
結晶融解熱量	kJ/mg	なし
結晶化温度	℃	なし
結晶化熱量	kJ/mg	なし
極限粘度 $[\eta]$	dl/g	1.14

20

*

共重合体	単位	実施例1	実施例2	比較例1	比較例2	比較例3
(イ)	重量部	65	65	65	65	80
(ロ)	重量部	15	7.5			
(ハ)	重量部	20	20	20	20	20
EPM	重量部			15		
SEBS	重量部		7.5		15	
安定剤	重量部	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1
曲げ弾性率	kgf/cm ²	6490	4940	6200	4660	8660
衝撃強度	kgf·cm/cm ²	8	11	7	11	4

(イ)：住友化学工業社製「AZ564」（商品名）

(ロ)：参考例1にて製造したオレフィン系共重合体

(ハ)：米国Cyprus Industrial Minerals Co. 製「ミストロンペーパー」（商品名）

EPM：住友化学工業社製「エスブレンV0115」（商品名）

SEBS：旭化成工業社製「タフテックH1042」（商品名）

*【0130】*1(a)：トリイソブチルアルミニウム
*2(b)：トリフェニルメチルテトラキス（ペンタフルオロフェニル）ボレート

*3(c)：ジメチルシリル（テトラメチルシクロペンタジエニル）（3-tert-ブチル-5-メチル-2-フェノキシ）チタニウムジクロライド

【0131】[IV] 熱可塑性樹脂組成物の製造

表2に示す配合を、2軸のバッチ式混練機ラボプラストミル（東洋精機製作所製）を用いて、温度200℃、スクリー回転数100rpmで5分間混練を行った。該組成物を200℃でプレス成形し、得られた成形品の曲げ弾性率をJIS-K-7203に、23℃におけるアイゾット衝撃強度をJIS-K-7110に準じて測定した。結果を表2に示した。結果から、本発明の熱可塑性樹脂組成物においては、成分（イ）～（ハ）が必須であり、比較例に比して実施例の方が曲げ弾性率と耐衝撃性のバランスに優れることがわかる。

【表2】

20

安定剤：チバ・ガイギー社製「イルガノックス1010」（商品名）

【0132】

【発明の効果】以上説明したとおり、本発明により、ポリプロピレン系樹脂を含有し、成形外觀及び常温や低温での耐衝撃性に優れ、高剛性を有し、かつスチレンのような芳香族ビニル化合物を含まない完全オレフィン成分のみからなる熱可塑性樹脂組成物を提供する点に存することができた。

40